

## XÁC ĐỊNH SẮT VÀ TERBI TRONG MẪU ĐỊA CHẤT BẰNG PHƯƠNG PHÁP TRÙNG PHÙNG GAMMA – GAMMA

Nguyễn Hoàng Phúc<sup>1</sup>  
Trương Văn Minh<sup>1</sup>  
Nguyễn Ngọc Anh<sup>2</sup>

### TÓM TẮT

Việc áp dụng phương pháp trùng phùng gamma - gamma trong nghiên cứu số liệu hạt nhân và phân tích kích hoạt trên các mẫu địa chất, mẫu sinh học và mẫu môi trường, đã được nhiều tác giả công bố. Điều này cho thấy khả năng áp dụng của phương pháp khá thành công. Trong bài báo này, trình bày kết quả xác định hàm lượng sắt (Fe) và terbi (Tb) trong mẫu địa chất bằng phương pháp trùng phùng gamma - gamma. Kết quả cho thấy phương pháp này đã loại bỏ ảnh hưởng của nền phong Compton và xác định được hàm lượng của Fe và Tb trong mẫu đại chất với độ chính xác cao so với giá trị được chứng nhận từ mẫu chuẩn.

**Từ khóa:** Phân tích kích hoạt, trùng phùng gamma-gamma, sắt, terbi

### 1. Đặt vấn đề

Hiện nay, phương pháp trùng phùng gamma - gamma được ứng dụng trong nghiên cứu số liệu và cấu trúc hạt nhân và từng bước đang nghiên cứu áp dụng cho phân tích kích hoạt xác định hàm lượng các nguyên tố có trong mẫu. Các thử nghiệm áp dụng phương của pháp trùng trong phân tích kích hoạt đã cho thấy khả năng giảm nền phong nhiễu, xác định hàm lượng nguyên tố có độ chính xác cao hơn so với đo đơn sử dụng một detector.

Tiếp theo những thành công của phương pháp trong phân tích Selenium, Asenic trong các mẫu địa chất, sinh học, môi trường với khả năng giảm nền nhiễu do các nguyên tố ảnh hưởng trực tiếp lên khả năng phân tích của các nguyên tố này đã được nghiên cứu đánh giá và công bố trên một số công trình tiêu biểu [1, 2, 4, 8]. Trong nghiên cứu này chúng tôi áp dụng phương pháp trùng phùng gamma – gamma để phân tích thêm Fe và Tb trong mẫu địa chất.

Mặc dù đây không phải là hai nguyên tố khó phân tích như Se, As hay Hg, nhưng để khẳng định khả năng phân tích đa nguyên tố của phương pháp trùng phùng gamma – gamma. Chúng tôi tiến hành phân tích Fe và Tb trong mẫu địa chất và kết quả hàm lượng của Fe và Tb trong nghiên cứu này được so sánh với giá trị chứng nhận từ mẫu chuẩn [6] cho thấy kết quả có độ chính xác cao, độ lệch so với giá trị chứng nhận rất ít. Điều này cho thấy phương pháp có khả năng phân tích đa nguyên tố và góp phần củng cố các minh chứng cho việc hoàn thiện quy trình phân tích kích hoạt bằng phương pháp trùng phùng gamma - gamma.

### 2. Phương pháp nghiên cứu

#### 2.1. Chuẩn bị mẫu

Mẫu phân tích được sử dụng trong nghiên cứu này là mẫu Montana II soil [6], mẫu được chuẩn bị có ký hiệu là Mo-124h khối lượng mẫu 148,3mg. Mẫu được đựng trong túi nilon sạch hàn kín, kích thước 10 mm × 10 mm. Mẫu được chiếu tại mâm quay của Lò phản ứng hạt

<sup>1</sup>Trường Đại học Đồng Nai  
Email: phuchn.physics@gmail.com

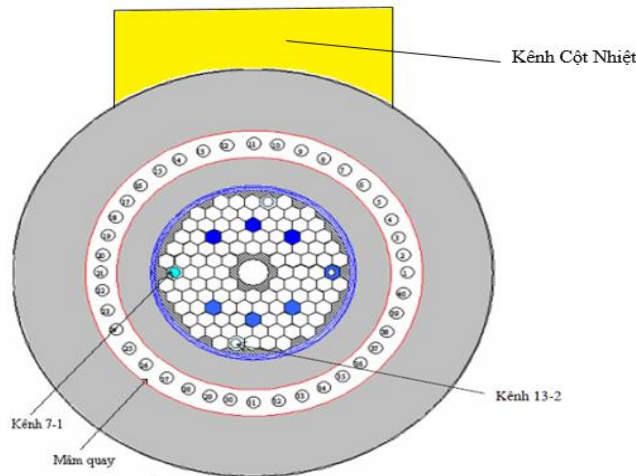
<sup>2</sup>Viện Nghiên cứu hạt nhân

nhân Đà Lạt. Thông lượng neutron tại vị trí chiếu mẫu  $\sim 3,76 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>/s với thời gian chiếu mẫu này là 10 giờ. Bảng 1 và hình 1 trình bày các thông số phổ

neutron tại vị trí chiếu mẫu và mặt cắt ngang vùng hoạt của lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.

**Bảng 1:** Thông số phổ neutron tại vị trí chiếu mẫu [3]

$\phi_{th}$ (n/cm <sup>2</sup> /s)	$\phi_{fast}$ (n/cm <sup>2</sup> /s)	A	F
$3,76 \times 10^{12}$	$0,32 \times 10^{12}$	0,102	30,10



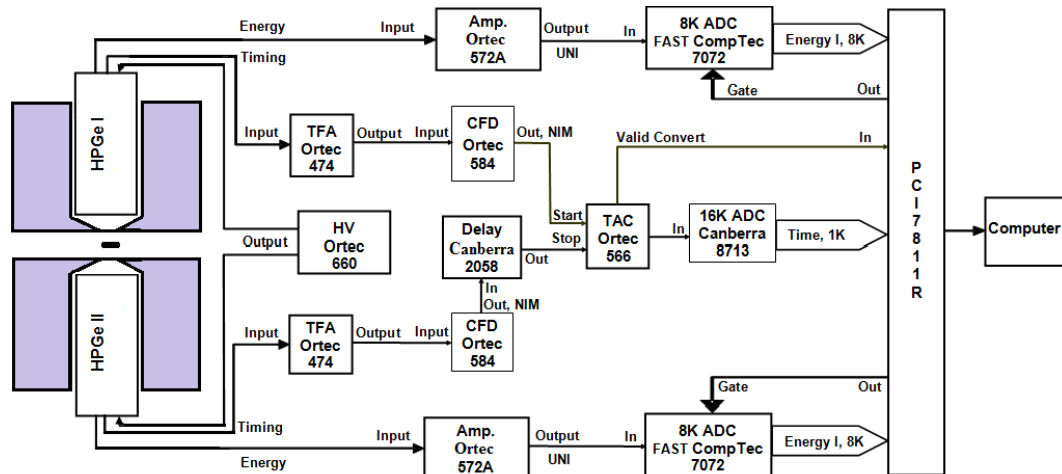
**Hình 1:** Mặt cắt ngang vùng hoạt của lò phản ứng HNDL

Các mẫu sau khi chiếu được để rã trong thời gian 70 ngày. Trong suốt quá trình đo đặc số liệu từ mẫu trên hệ thống đo trùng phùng, mẫu luôn được đặt cố

định tại vị trí giữa và song song với bề mặt hai detector.

**2.2. Sơ đồ hệ thực nghiệm**

Cấu hình hệ đo trùng phùng sử dụng trong nghiên cứu được mô tả trên Hình 3.



**Hình 2:** Hệ đo và cách bố trí thí nghiệm

Trong đó: HPGe I và HPGe II là hai detector bán dẫn GMX35, hiệu suất ghi tương đối và độ phân giải tại năng lượng 1332 keV của detector I là 35% và 1,9keV; detector II là 38% và 1,9 keV.

Mẫu đo được đặt giữa hai detector, song song với mặt của các detector, khoảng cách từ mẫu tới mỗi detector là 4 cm. Các tham số của hệ đo được lựa chọn theo phương pháp trong tài liệu tham khảo [1, 2].

Trong chế độ trùng phùng, hiệu suất ghi thấp, nên mẫu được đo với thời gian 75 giờ. Số liệu lưu trữ theo phương pháp sự kiện – sự kiện nhằm loại bỏ vấn đề trôi kênh với phép đo dài, và xử lý theo phương pháp cộng biên độ các xung trùng phùng ghi sự kiện – sự kiện.

### 2.3. Xử lý số liệu

Mẫu được đo ở chế độ trùng phùng ghi “sự kiện - sự kiện”, việc đánh giá phông do trùng phùng ngẫu nhiên gây ra trong phổ và giảm nền phông do các thành phần trong mẫu gây ra, chúng tôi sử dụng kỹ thuật bù trừ với các vùng phông lân cận của đỉnh quan tâm, phương pháp chọn phổ gate đã được sử dụng [1, 2]. Phổ đo trong trường hợp chưa được loại trừ phông sẽ được xử lý tính toán để trừ phông thu được trong việc đo phông, diện tích của một đỉnh trong phổ trùng phùng sẽ được tính bằng cách tổng số đếm của các kênh trong vùng đỉnh với độ tin cậy  $2\sigma$ .

Tỷ số diện tích đỉnh/phông trong trường hợp đo trùng phùng được sử dụng để đánh giá giới hạn phát hiện của phương pháp đo. Ngoài ra giới hạn phát hiện trong phân tích cũng được đánh giá theo công thức sau [7]:

$$C_{DL} = \frac{3,29C \sqrt{\left(1 + \frac{\eta_p}{\eta_B}\right)}}{\sqrt{\left(\frac{P}{B}\right)\left(\frac{P}{t}\right)t}} \quad (1)$$

trong đó:

$C_{DL}$  là giới hạn đo tính theo đơn vị hàm lượng (ppm);

$C$  là hàm lượng của đồng vị quan tâm trong mẫu phân tích (ppm);

$P$  là diện tích đỉnh phổ (số đếm);

$B$  là diện tích nền phông dưới đỉnh (số đếm);

$t$  là thời gian đo mẫu (giây);

$\eta_p$  và  $\eta_B$  là hằng số.

Hàm lượng của Fe và Tb trong mẫu được xác định bằng công thức sau:

$$\rho = \frac{\left(\frac{N_p/t_c}{W \times D \times C}\right)_a}{\left(\frac{N_p/t_c}{W \times \rho \times D \times C}\right)_s} \quad (2)$$

trong đó:

$\rho$  là hàm lượng của nguyên tố cần phân tích;

$N_p$  là số đếm đỉnh của đồng vị quan tâm trong mẫu chuẩn và mẫu phân tích;

$W$  là khối lượng mẫu phân tích (g);

$W$  là khối lượng nguyên tố quan tâm trong mẫu chuẩn = hàm lượng  $\times$  khối lượng mẫu chuẩn (g);

$D$  là hệ số rã =  $\exp(-\lambda t_d)$ ,  $t_d$  là thời gian phân rã;

$C$  là hệ số đo =  $[1 - \exp(-\lambda t_c)]/(\lambda t_c)$ ;

Ký hiệu:  $a$  chỉ mẫu phân tích và  $s$  chỉ mẫu chuẩn.

Áp dụng công thức truyền sai số ta có công thức tính sai số tương đối như sau:

$$\sigma_\rho^2 = \rho^2 \left[ \left(\frac{\sigma_{N_a}}{N_a}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_s}}{N_s}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{w_s}}{w_s}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{w_a}}{w_a}\right)^2 \right] \quad (3)$$

### 3. Kết quả thảo luận

#### ❖ Phân tích Fe

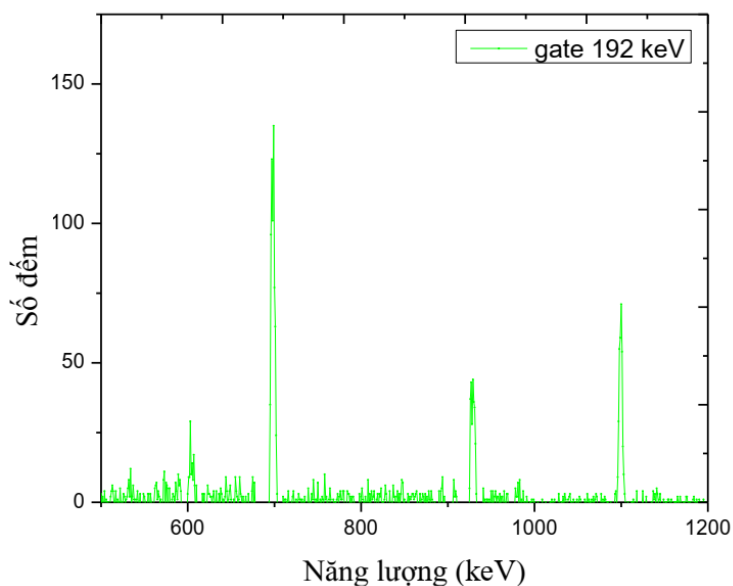
Khi phân tích Fe trong các mẫu này, đồng vị  $^{59}\text{Fe}$  có chu kỳ bán rã 44,5 ngày được sử dụng. Các đỉnh gamma có cường độ lớn thường được sử dụng trong phân tích kích hoạt là: 192,3 keV; 1099,3 keV và 1291,6 keV. Trong chế độ đo trùng phùng cặp đỉnh 1099,3 keV - 192,3

keV được sử dụng làm gate trong phân tích Fe. Đỉnh gamma 1099,3 keV thường không bị nhiễu bởi các đỉnh khác nên được dùng để xác định Fe trong mẫu. Kết quả tính toán diện tích đỉnh, diện tích phông, tỷ số đỉnh/phông và giới hạn phát hiện trong trường hợp được trình bày trong bảng 2.

**Bảng 2:** Kết quả phân tích Fe trong mẫu

Năng lượng gate (keV)	Năng lượng (keV)	Diện tích đỉnh (số đếm)	Diện tích phông (số đếm)	Tỷ số đỉnh/phông	Giới hạn đo (ppm)	Năng lượng gate (keV)
192	1099,3	321(3)	33(0,4)	9,73	0,08	192
1099,3	192	308(4)	31(0,4)	9,94	0,02	1099,3

Phổ gate đỉnh 192 keV của  $^{59}\text{Fe}$  trong mẫu Montana II Soil được trình bày ở Hình 3.



**Hình 3:** Phổ gate đỉnh 192 keV của  $^{59}\text{Fe}$

#### ❖ Tính hàm lượng

Sau khi xác định các thông tin cần quan tâm của đỉnh phổ trong mẫu Mo-124h chúng tôi tiến hành xác định hàm lượng Fe có trong mẫu bằng phương

pháp chuẩn hóa tương đối và áp dụng công thức (2) với mẫu cần tính là mẫu Mo-124h. Kết quả về hàm lượng Fe trong mẫu được trình bày trong bảng 3.

**Bảng 3:** Kết quả phân tích hàm lượng Fe trong mẫu Mo-124h

Tên mẫu	Nguyên tố	Chứng nhận (%)	Đo trùng phùng	
			Hàm lượng (%)	U-Score
Mo – 124h	Fe	2,82 ± 0,04	2,80 ± 0,06	0,28

Từ kết quả trong bảng 3 cho thấy sai số trong tính hàm lượng Fe trong mẫu bằng phương pháp trùng phùng là nhỏ. Đồng thời các giá trị U-Score trong phép tính hàm lượng Fe trong mẫu đo đều nhỏ hơn 1,65. Do đó, kết quả phân tích hàm lượng Fe trong mẫu có độ chính xác cao và đáng tin cậy.

#### ❖ Phân tích Tb

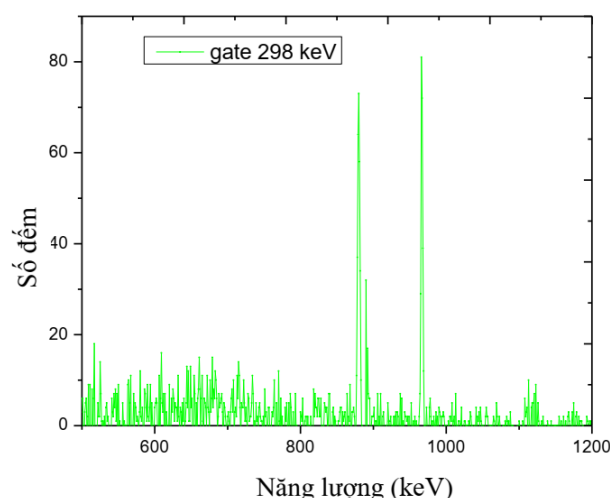
Khi phân tích Tb trong mẫu Montana II Soil, đồng vị  $^{160}\text{Tb}$  có chu kỳ bán rã 72,3 ngày được sử dụng. Đồng vị

này có các đỉnh gamma với cường độ lớn thường được sử dụng trong phân tích kích hoạt là: 298,6 keV (26,1%) keV; 879,4 keV (30,1%); 966,2 keV (20,1%) và 1177,9 keV (14,9%). Trong chế độ đo trùng phùng thường sử dụng cặp đỉnh 298,6 keV - 879,4 keV và cặp đỉnh 298,6 keV - 966,2 keV để làm gate trong phân tích Tb. Kết quả tính diện tích đỉnh, diện tích phông, tỷ số đỉnh/phông và giới hạn phát hiện trong trường hợp đo trùng phùng được trình bày trong bảng 4.

**Bảng 4:** Số liệu Tb trong mẫu phân tích

Năng lượng gate (keV)	Đỉnh quan tâm (keV)	Diện tích đỉnh	Diện tích phông	Tỷ số đỉnh trên phông	Giới hạn phát hiện (ppm)
966,2	298,6	259(3)	37(0,4)	7,00	0,02
298,6	966,2	244(2)	49(0,4)	4,98	0,02

Trong hình 4 biểu diễn phổ gate đỉnh 298keV của  $^{160}\text{Tb}$  trong mẫu Montana II Soil.

**Hình 4:** Phổ gate đỉnh 298,6 keV của  $^{160}\text{Tb}$

Sau khi xác định các thông tin cần quan tâm của đỉnh phổ trong mẫu Mo-124h chúng tôi tiến hành xác định hàm

lượng Tb trong mẫu. Kết quả tính hàm lượng Tb trong mẫu Montana II Soil được trình bày trong bảng 5.

**Bảng 5: Hàm lượng Tb trong mẫu Mo-124h**

Tên mẫu	Nguyên tố	Chứng nhận (ppm)	Đo trùng phùng	
			Hàm lượng (ppm)	U-Score
Mo – 124h	Tb	0,8	0,79 ± 0,02	0,50

Từ kết quả trong bảng 5 cho thấy sai số trong tính hàm lượng Tb trong mẫu bằng phương pháp trùng phùng là rất nhỏ. Đồng thời các giá trị U-Score trong phép tính hàm lượng Tb trong mẫu đo đều nhỏ hơn 1,65. Từ đó cho thấy kết quả phân tích hàm lượng Tb trong mẫu này là có độ chính xác cao và đáng tin cậy.

Các kết quả trên còn được thể hiện trên phổ, cụ thể khi sử dụng đỉnh gate để xác định các đỉnh quan tâm của  $^{59}\text{Fe}$  và  $^{160}\text{Tb}$ , ta thấy nền phổ Compton và các đồng vị gây nhiễu lên đỉnh quan tâm gần như đã được loại bỏ gần như hoàn toàn. Tỷ số đỉnh trên phổ và giới hạn phát hiện được cải thiện.

Từ bảng 3 và bảng 5 cho thấy số liệu về hàm lượng Fe và Tb trong mẫu Địa chất cho thấy giá trị tính toán hàm lượng Fe và Tb đều bị sai lệch so với số liệu được cho trong chứng nhận, nhưng các giá trị này đều gần với giá trị đã được chứng nhận. Như vậy, có thể thấy rằng các giá trị xác định được từ thực nghiệm là có độ chính xác cao và độ lệch nằm trong giới hạn cho phép.

#### 4. Kết luận

Kết quả phân tích Fe và Tb cho thấy đã loại bỏ được các đồng vị nhiễu, tỷ số đỉnh/phông và giới hạn phát hiện đã được cải thiện đáng kể. Xác định được hàm lượng Fe và Tb trong mẫu Montana II Soil bằng kỹ thuật đo trùng phùng theo phương pháp chuẩn hóa tương đối. Các kết quả thu được trong quá trình phân tích gần với giá trị chứng nhận, điều này cho phép khẳng định các kết quả thực nghiệm trong bài báo này là đáng tin cậy và có độ chính xác cao.

Việc phân tích, xác định hàm lượng Fe và Tb trong mẫu đại chất một cách chính xác và tin cậy còn khẳng định thêm về khả năng phân tích đa nguyên tố của phương pháp đo trùng phùng gamma – gamma trong phân tích kích hoạt.

Tuy nhiên, để đạt được cùng sai số thống kê thì trong phép đo trùng phùng phải mất rất nhiều thời gian, gây tốn kém và trong một số trường hợp cụ thể sẽ không thực sự hiệu quả. Đây cũng là yếu tố hạn chế lớn nhất của phương pháp đo trùng phùng gamma – gamma.

*Lời cảm ơn:* Nhóm tác giả xin chân thành cảm ơn đến Ban lãnh đạo Phòng Vật lý điện tử, Viện Nghiên cứu hạt nhân đã tạo điều kiện cho nhóm được tiến hành thực nghiệm trên hệ phổ kế trùng phùng gamma - gamma tại kênh thực nghiệm số 3 của Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt và cảm ơn Ban Giám hiệu Trường Đại học Đồng Nai đã tạo điều kiện để nhóm nghiên cứu hoàn thành bài báo này.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Nguyen Xuan Hai, Truong Van Minh, Pham Dinh Khang, Ho Huu Thang, Nguyen Ngoc Anh, *Determination of selenium in geological sample by event–event coincidence technique*, J Radioanal Nucl Chem, Vol 304, 2015, pp 1179–1183.

2. Truong Van Minh, *Determination of selenium in environmental sample by gamma–gamma coincidence method*, International Journal of Environmental Engineering–IJEE, Vol 2, 2015, pp 108 – 111.

3. Cao Dong Vu, *Characterization of neutron spectrum parameters at irradiation channels for neutron activation analysis after full conversion of the Dalat nuclear research reactor to low enriched uranium fuel*. Nuclear Science and Technology, 2014. 4(1): p. 70-75.

4. S. Horne, S. Landsberger, “*Selenium and mercury determination in biological samples using gamma–gamma coincidence and Compton suppression*”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 291, 2012, 49-53.

5. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/chartNuc.jsp>

6. Montana II Soil, Certificate of analysis, Standard Reference Material 2711a.

7. D.A. Gedcke, How counting statistics controls detection limits and peak precision, AN59 Application Note, ORTEC.

8. B.E. Tomlin, R. Zeisler, R.M. Lindstrom, “*gamma-gamma coincidence spectrometer for instrumental neutron-activation analysis*”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 589, 2008, 243-249.

### DETERMINATION OF IRON AND TERBIUM CONTENT IN GEOLOGICAL SAMPLE BY GAMMA - GAMMA COINCIDENCE METHOD

#### ABSTRACT

*The application of gamma - gamma coincidence method in data nuclear research and activation analysis of geological sample, biological sample and environmental sample has been stated by many authors. This shows that the applicability of the*

*method is quite successful. This paper shows the activated results of Iron and Terbium in Montana II Soil sample by gamma – gamma coincidence method. The results showed that reduced effect Compton scattering and determination content of Fe and Tb in geological samples with high accuracy compared to the certified from the standard sample.*

**Keywords:** *Neutron activation analysis, gamma - gamma coincidence, iron, terbium*

(Received: 5/10/2021, Revised: 14/10/2021, Accepted for publication: 21/10/2021)